

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 60-027105

(43)Date of publication of application : 12.02.1985

(51)Int.Cl. H01F 1/06

C22C 38/00

(21)Application number : 58-136636

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS
CO LTD

(22)Date of filing : 25.07.1983

(72)Inventor : YAMAMOTO HITOSHI
SAGAWA MASATO
FUJIMURA SETSUO
TOGAWA MASAO
MATSUURA YUTAKA

(54) RARE EARTH, IRON, BORON ALLOY POWDER FOR PERMANENT MAGNET

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain homogeneous and single phase alloy for magnet by consisting main constituents of 8W30atom% R (at least one of rare earth elements including Y), 2W28atom% B and 65W82atom% Fe.

CONSTITUTION: Main constituents consist of 8W30atom% R, 2W28atom% B and 65W82atom% Fe (including part of Fe substituted by at least one of Co which is 50% or less of Fe and Ni which is 8.0% or less of Fe). The main phase is tetragon, diameter of the mean crystal grain is 30 μ m or more, the mean grain size is 0.3W80 μ m and actually consists of single crystal. For this reason, extremely homogeneous and single phase alloy which is excellent in oxidization proof and corrosion proof for magnet can be obtained and the yield is improved.

19

⑩ 日本国特許庁(J P)

⑪ 特許出願公告

⑫ 特 許 公 報 (B 2)

平4-61042

⑬ Int. Cl. 3

B 22 F 1/00
C 22 C 38/00
H 01 F 1/06
// C 22 C 33/02

識別記号

Y
3 0 3 D
J

庁内整理番号

7803-4K
7325-4K
7619-4K
7371-5E

⑭ 公告

平成4年(1992)9月29日

H 01 F 1/06

A

発明の数 1 (全8頁)

⑮ 発明の名称 希土類・鉄・ボロン系永久磁石用合金粉末

⑯ 特 願 昭58-136636

⑰ 公 開 昭60-27105

⑱ 出 願 昭58(1983)7月25日

⑲ 昭60(1985)2月12日

⑳ 発 明 者 山 本 日 登 志 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
㉑ 発 明 者 佐 川 真 人 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
㉒ 発 明 者 藤 村 節 夫 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
㉓ 発 明 者 戸 川 雅 夫 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
㉔ 発 明 者 松 浦 裕 大阪府三島郡島本町江川二丁目15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内
㉕ 出 願 人 住友特殊金属株式会社 大阪府大阪市中北区北浜4丁目7番19号
㉖ 代 理 人 弁理士 押田 良久
審 査 官 井 口 雅 文

1

2

㉗ 特許請求の範囲

1 R(但しRはYを含む希土類元素の少なくとも1種)8原子%~30原子%、

B2原子%~28原子%、

Fe65原子%~82原子%(Feの一部をFeの50%以下のCo、Feの8.0%以下のNiのうち少なくとも1種で置換したものを含む)を主成分とし、

主相が正方晶で、平均結晶粒径が30 μ m以上であり、平均粒度が0.3~80 μ mであり、実質的に単結晶ないし数個の結晶粒からなる希土類・鉄・ボロン系永久磁石用合金粉末。

発明の詳細な説明

産業上の利用分野

この発明は、R(RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)、B、Feを主成分とする永久磁石用合金粉末に係り、実質的に単結晶ないし数個の結晶粒からなり特定の平均結晶粒径及び平均粒度を有しすぐれた磁気特性を発揮して焼結永久

磁石用あるいはボンド磁石用としてそのまま使用できる希土類・鉄・ボロン系永久磁石用合金粉末に関する。

従来の技術

永久磁石材料は、一般家庭の各種電気製品から、大型コンピュータの周辺端末機器まで、幅広い分野で使用される極めて重要な電気・電子材料の一つである。近年の電気・電子機器の小形化、高効率化の要求にともない、永久磁石材料は益々高性能化が求められるようになった。

現在の代表的な永久磁石材料は、アルニコ、ハードフェライトおよび希土類コバルト磁石である。近年のコバルトの原料事情の不安定化に伴ない、コバルトを20~30wt%含むアルニコ磁石の需要は減り、鉄の酸化物を主成分とする安価なハードフェライトが磁石材料の主流を占めるようになった。

一方、Smを主成分とする希土類金属と、Coを

主成分とする遷移金属よりなる金属間化合物であり、六方晶構造を主相とする RCo_5 系、菱面体構造の結晶組織を主相とする R_2Co_{11} 系磁石はすぐれた磁石特性を有している。

かかる希土類コバルト磁石はコバルトを50～60wt%も含むうえ、希土類鉱石中にあまり含まれていないSmを使用するため大変高価であるが、他方の磁石に比べて、磁気特性が格段に高いため、主として小型で付加価値の高い磁気回路に多用されるようになった。

また、Fe-R系やFe-B-R系合金を永久磁石化する試みもなされているが（特開昭57-141901号、特開昭57-210934号）、いずれも超急速冷却リボンやスパッタ薄膜により、非晶質化した合金を粉末化したりあるいは熱処理することによつて高保磁力を示すことが報告されている。

発明が解決しようとする課題

しかし、これら超急速冷却リボンやスパッタ薄膜は磁石特性としての角形性が悪く、本質的に等方性であり、従来慣用されている磁石に抵抗できる実用永久磁石材料とは言えない。さらに、前記粉末を例えばボンド磁石として用いても極めて低い磁気特性しか示さず実用的なものでなかつた。

そこで、本発明者は先に、高価なSmやCoを必ずしも含有しない新しい高性能永久磁石としてR-Fe-B系（RはYを含む希土類元素の少なくとも1種）永久磁石を提案した（特願昭57-145072号特開昭59-046008号）。

この永久磁石はRとしてNdやPrを中心とする資源的に豊富な軽希土類を用い、B、Feを主成分として25MGOe以上の極めて高いエネルギー積を示す、すぐれた永久磁石材料である。

発明が解決しようとする課題

この発明は、希土類・鉄・ボロンを主成分とする上記の新規な永久磁石材料をさらに発展させることを目的としており、等方性あるいは異方性焼結永久磁石用原料粉末としてすぐれた磁石特性が容易に得られる均質な実質的に単結晶からなり、磁界中プレス成形時の粉末の配向度が良好な希土類・ボロン・鉄系永久磁石用合金粉末を目的としている。

また、合金粉末のみですぐれた磁気特性を有し、ボンド磁石、ゴム磁石用合金粉末に適した均質な実質的に単結晶からなる希土類・ボロン・鉄

系永久磁石用合金粉末を目的としている。

課題を解決するための手段

この発明は、

R（但しRはYを含む希土類元素の少なくとも1

5 種）8原子%～30原子%、

B2原子%～28原子%、

Fe65原子%～82原子%（Feの一部をFeの50%以下のCo、Feの8.0%以下のNiのうち少なくとも1種で置換したものを含む）を主成分とし、

10 主相が正方晶で、平均結晶粒径が $30\mu m$ 以上であり、平均粒度が $0.3\sim 80\mu m$ であり、実質的に単結晶ないし数個の結晶粒からなる希土類・鉄・ボロン系永久磁石用合金粉末である。

作 用

15 この発明の永久磁石用合金粉末は、RとしてNdやPrを中心とする資源的に豊富な軽希土類を主に用い、R、B、Feを主成分とし、熔融・粉碎法や直接還元拡散法にて得られた実質的に単結晶ないし数個の結晶粒からなり特定の平均結晶粒径及び平均粒度を有し、合金粉末のみですぐれた磁気特性を有し、そのままボンド磁石用粉末材料に適しており、また、焼結磁石用粉末材料として微細で均質なため、24MGOe以上の極めて高いエネルギー積並びに高残留磁束密度、高保磁力を有し、かつすぐれた残留磁束密度の温度特性を示す永久磁石材料を安価に得ることができる。

組成限定理由

以下に、この発明における希土類・鉄・ボロン系永久磁石用合金粉末の組成限定理由を説明する。

30 この発明の永久磁石用合金粉末に用いる希土類元素Rは、イットリウム（Y）を包含し軽希土類及び重希土類を包含する希土類元素であり、これらのうち少なくとも1種、好ましくはNd、Pr等の軽希土類を主体として、あるいはNd、Pr等との混合物を用いる。

すなわち、Rとしては、

ネオジム（Nd）、プラセオジム（Pr）、

ランタン（La）、セリウム（Ce）、

テルビウム（Tb）、ジスプロシウム（Dy）、

ホルミウム（Ho）、エルビウム（Er）、

ユウロビウム（Eu）、サマリウム（Sm）、

カドリニウム（Gd）、プロメチウム（Pm）、

ツリウム（Tm）、イッテルビウム（Yb）、

ルテチウム (Lu)、イットリウム (Y) が包含される。

Rとしては、軽希土類をもつて足り、特にNd、Prが好ましい。又通例Rのうち1種をもつて足りるが、実用上は2種以上の混合物（ミツシメタル、ジジム等）を入手上の便宜等の理由により用いることができ、Sm、Y、La、Ce、Gd、等は他のR、特にNd、Pr等との混合物として用いることができる。なお、このRは純希土類元素でなくてもよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物を含有するものでも差支えない。

Rは、新規なR-Fe-B系永久磁石を製造する合金粉末として必須元素であつて、8原子%未満では高磁気特性、特に高保磁力が得られず、30原子%を越えると残留磁束密度 (Br) が低下して、すぐれた特性の永久磁石が得られない。よつて、Rは8原子%~30原子%の範囲とする。

Bは、新規なR-Fe-B系永久磁石を製造する合金粉末として必須元素であつて、2原子%未満では高い保磁力 (iHc) は得られず、28原子%を越えると残留磁束密度 (Br) が低下するため、すぐれた永久磁石が得られない。よつて、Bは2原子%~28原子%の範囲とする。

Feは、新規なR-Fe-B系永久磁石を製造する合金粉末として必須元素であるが、65原子%未満では残留磁束密度 (Br) が低下し、82原子%を越えると高い保磁力が得られないので、Feは65原子%~82原子%に限定する。

また、Feの一部をCoおよび/またはNiで置換する理由は、永久磁石の温度特性を向上させる効果が得られるためであるが、CoはFeの50%を越えると、高い保磁力が得られず、NiはFeの8%を越えると高い残留磁束密度が得られず、すぐれた永久磁石が得られない。よつて、Coは50%、Niは8%を上限とする。

この発明の合金粉末において、高い残留磁束密度と高い保磁力を共に有するすぐれた永久磁石を得るためには、R10原子%~25原子%、B4原子%~26原子%、Fe68原子%~80原子%が好ましい。

また、この発明による合金粉末は、前記R、B、Fe合金あるいはCoまたはNiを含有するR、B、Fe合金に、

9.5原子%以下のAl、4.5原子%以下のTi、

9.5原子%以下のV、8.5原子%以下のCr、8.0原子%以下のMn、5原子%以下のBi、12.5原子%以下のNb、10.5原子%以下のTa、9.5原子%以下のMo、9.5原子%以下のW、2.5原子%以下のSb、7原子%以下のGe、3.5原子%以下のSn、5.5原子%以下のZr、

5.5原子%以下のHfのうち少なくとも1種を添加含有させることにより、永久磁石合金の高保磁力化が可能になる。

含有酸素量は、3500ppmを越えると本系合金粉末より永久磁石を作製したとき、すぐれた磁気特性が得られないため3500ppm以下の含有酸素量とし、さらにすぐれた磁気特性を得るには3000ppm以下の含有酸素量が望ましく、また残留磁束密度、保磁力、最大エネルギー積のいずれもが高くすぐれた磁気特性を得るためには、含有酸素量2500ppm以下が最も望ましい。

含有炭素量は、1200ppmを越えると本系合金粉末より永久磁石を作製したとき、すぐれた磁気特性が得られないため1200ppm以下の含有炭素量とし、さらにすぐれた磁気特性を得るには1000ppm以下の含有炭素量が望ましく、また残留磁束密度、保磁力、最大エネルギー積のいずれもが高くすぐれた磁気特性を得るためには、含有炭素量800ppm以下が最も望ましい。

含有りん量は、150ppmを越えると本系合金粉末より永久磁石を作製したとき、すぐれた磁気特性が得られないため150ppm以下の含有りん量とし、さらにすぐれた磁気特性を得るには120ppm以下の含有りん量が望ましく、また残留磁束密度、保磁力、最大エネルギー積のいずれもが高くすぐれた磁気特性を得るためには、含有りん量100ppm以下が最も望ましい。

含有いおう量は、150ppmを越えると本系合金粉末より永久磁石を作製したとき、すぐれた磁気特性が得られないため150ppm以下の含有いおう量とし、さらにすぐれた磁気特性を得るには120ppm以下のいおう量が望ましく、また、残留磁束密度、保磁力、最大エネルギー積のいずれもが高くすぐれた磁気特性を得るためには、含有いおう量100ppm以下が最も望ましい。

組織等

この発明のR-Fe-B系永久磁石用合金粉末において、結晶相は主相が正方晶であることが、

※は用い
ていない
↓
0.01%
0.01%

特に微細で均一な合金粉末を得て、すぐれた磁気特性を有する焼結永久磁石を作製するのに望ましい。

この発明による永久磁石用合金粉末の平均結晶粒径を $30\mu\text{m}$ 以上に限定する理由は、平均結晶粒径が $30\mu\text{m}$ 未満の場合、得られた合金粉末は多結晶の合金粉末となり、磁界中プレス成形時に粉末の配向度が低下し、得られる磁気特性が低くなるためであり、平均結晶粒径が $30\mu\text{m}$ 以上となると、この合金粉末より高い残留磁束密度、高エネルギー積を有する永久磁石が得られるためである。

また、平均結晶粒径が $50\mu\text{m}$ 以上であると、磁界中プレス成形時の粉末配向度が向上し、さらにすぐれた磁気特性を有する永久磁石が得られる。

また、この発明による永久磁石用合金粉末の粒度は、平均粒度が $80\mu\text{m}$ を越えると永久磁石の作製時にすぐれた磁気特性、とりわけ高い保磁力が得られず、また平均粒度が $0.3\mu\text{m}$ 未満では永久磁石の作製工程、すなわち、プレス成形、焼結、時効処理工程における酸化が著しくすぐれた磁気特性が得られないため、 $0.3\sim 80\mu\text{m}$ の平均粒度とする。さらに、すぐれた磁気特性を得るには、平均粒度 $1.0\sim 20\mu\text{m}$ の合金粉末が最も望ましい。

上記の如く、合金粉末の平均粒度が $0.3\sim 80\mu\text{m}$ であるため、平均結晶粒径 $30\mu\text{m}$ 以上でかつ平均粒度 $0.5\sim 30\mu\text{m}$ である合金粉末は、実質的に単結晶合金粉末であり、磁界中プレス成形時に粉末の配向度が向上するため最も好ましい。

また、平均結晶粒径 $30\mu\text{m}$ 以上でかつ平均粒度 $30\sim 80\mu\text{m}$ の合金粉末は、実質的に単結晶ないし数個の結晶粒からなる合金粉末であり、この結晶粒界の個数は少ないほど粉末の配向度が向上するため、永久磁石用合金粉末として好ましい。

永久磁石材料

この発明による永久磁石用合金粉末を使用して得られる磁気異方性永久磁石合金は、保磁力 $iH_c \geq 1\text{kOe}$ 、残留磁束密度 $Br > 4\text{kG}$ 、を示し、最大エネルギー積 $(BH)_{\text{max}}$ はハードフェライトと同等以上となり、最も好ましい組成範囲では、 $(BH)_{\text{max}} \geq 10\text{MGOe}$ を示し、最大値は 25MGOe 以上に達する。

また、この発明による合金粉末の組成が、R8原子% \sim 30原子%、B2原子% \sim 28原子%、Co50

原子%以下、Fe65原子% \sim 82原子%の場合、得られる磁気異方性永久磁石合金は、上記磁石合金と同等の磁気特性を示し、かつ残留磁束密度の温度係数が $0.1\%/^{\circ}\text{C}$ 以下となり、すぐれた特性が得られる。

また、合金粉末のRの主成分がその50%以上を軽希土類金属が占める場合で、R12原子% \sim 20原子%、B4原子% \sim 24原子%、Fe65原子% \sim 82原子%の場合、あるいはさらにCo5原子% \sim 45原子%を含有するとき最もすぐれた磁気特性を示し、特に軽希土類金属がNdの場合には、 $(BH)_{\text{max}}$ はその最大値が 33MGOe 以上に達する。

製造方法

次に、この発明の希土類・鉄・ボロン系永久磁石用合金粉末の製造方法を説明する。

この発明の合金粉末は、原料を溶解して鑄造後に機械的粉砕する工程により製造でき、例えば出発原料として、電解鉄、Bを含有し残部はFe及びAl、Si、C等の不純物からなるフェロボロン合金、希土類金属、あるいはさらに、電解Coを配合した原料粉を高周波溶解し、その後水冷銅鑄型に鑄造し、スタンプミルにより粗粉砕し、次にボールミルにより粉砕するプロセス等が採用できる。

なお、粉砕は後述の実施例に示すスタンプミル、アトライター等の通常の機械的な粉砕、ジェットミル等の乾式粉砕並びに種々の溶媒を用いる湿式粉砕を採用することもできる。

また、この発明の合金粉末は、Ca等の還元剤を用いるプロセスによつても製造することができる。以下に、Ca還元法による本合金粉末の製造方法を説明する。

希土類酸化物は、R、Fe、Bを必須成分とする永久磁石用合金粉末の製造において不可欠であり、種々の希土類酸化物のうち少なくとも1種を、所望する合金組成に応じて選定する。

また、上記の永久磁石合金組成とするため、フェロボロン粉、フェロニッケル粉、フェロコバルト粉、鉄粉、コバルト粉、ニッケル粉のうち少なくとも1種を所望する合金組成に応じて選定した原料粉と、上記希土類酸化物粉とを前記した組成範囲に配合し、原料混合粉とする。

希土類酸化物を還元する還元剤には、Caまたは CaH_2 を使用する。原料混合粉に混合するCaま

たは CaH_2 の必要量は、使用した希土類酸化物を還元するのに必要な化学量論的必要量の2.0から4.0倍（重量比）とする。

上述した希土類酸化物及び原料粉、還元剤を所定量配合したのち、例えばV型混合機等を使用し、不活性ガス雰囲気中で混合を行なう。ついで混合した粉末を不活性ガス流気雰囲気中、900℃～1200℃の温度範囲で、0.5時間から40時間、還元・拡散反応を行なわせる。

ここで、還元温度を900℃～1200℃に限定したのは、900℃未満では希土類酸化物のCaによる還元が不十分となり、所定の組成を有する合金粉末が得られず、また合金粉末の含有酸素量が増大して好ましくないためであり、また還元温度が1200℃を越えると、還元時の拡散反応が促進されすぎて結晶粒成長を起し、所定の平均粒度を有する合金粉末が得られず、また反応生成物中のCaの残存量が多くなり、永久磁石用合金粉末として好ましくないためである。

さらに、所定の平均粒度及び成分組成を有しかつ低い含有酸素量並びに残存Ca量を有する高性能永久磁石用合金粉末を得るためには、1000℃～1100℃の還元温度が最も望ましい。

還元拡散反応終了後は、室温まで炉冷あるいは急速冷却してもよいが、冷却雰囲気は、得られた合金粉末を酸化させないように不活性ガス中が望ましい。

得られた還元反応生成物を水中に投入し、反応副生成物のCaOを H_2O と反応させて $\text{Ca}(\text{OH})_2$ となし除去する。

すなわち、化学量論的必要量の2.0～4.0倍の還元剤を配合して得られた還元反応生成物は、水中において発熱、自然崩壊してスラリー状態となるので、特別に機械的粉砕を必要としない利点がある。

また、水中で自然崩壊した還元反応生成物のうわすみ液は水酸化カルシウム懸濁液となり、この懸濁液にリーチング、すなわち攪拌、うわすみ液除去、注水を繰返す。この攪拌の際に酢酸等の弱酸を加えることにより、合金粉末の表面酸処理がなされ、得られる合金粉末の含有酸素量は低減される。

このようにして得られたスラリー状合金粉末を、例えば低融点のアセトン、メタノール等の有

機溶剤で洗浄し、さらに室温で12時間から36時間、 10^{-2} Torr以下で真空乾燥し、新規な高性能永久磁石用合金粉末を得ることができる。

得られた合金粉末は、R（但しRはYを含む希土類元素の少なくとも1種）8原子%～30原子%、B2原子%～28原子%、Fe65原子%～82原子%（Feの一部をFeの50%以下のCo、Feの8.0%以下のNiのうち少なくとも1種で置換したものを含む）を主成分とし、主相が正方晶で、平均結晶粒径が $30\mu\text{m}$ 以上、平均粒度が $0.3\sim 80\mu\text{m}$ であり、含有酸素量が3500ppm以下、含有炭素量が1200ppm以下、含有りん量が150ppm以下、含有いおう量が150ppm以下であり、この合金粉末により前記した如くすぐれた磁気特性を有する希土類・鉄・ボロン系永久磁石材料を製造することができる。

この発明による合金粉末は、Bを2原子%～28原子%を必須成分として含有しているため、純鉄粉に比べて融点が低く加熱時に希土類あるいは他の成分元素と非常に拡散しやすく、極めて均質かつ単相の磁石用合金がえられる利点があり、また、同じ理由からBを含有しない純鉄粉のみを用いた合金粉末に比較して、耐酸化性、耐腐食性にすぐれている。そのため、スラリーが水中にある際のリーチング工程間における合金粉末の耐酸化性、耐腐食性は向上し、その結果、得られる合金粉末の含有酸素量が低減され、さらに合金粉末の表面酸性処理も短時間でよく、歩留も向上する効果がある。

次に、上述した製造工程により得られた合金粉末を用いて焼結永久磁石を得るためには、まずこの合金粉末を $0.5\sim 8.0\text{t/cm}^2$ の圧力で成型し、その際7～13kOeの磁界を印加しながら成型することにより、磁氣的異方性磁石が得られ、無磁界中で成型することにより磁氣的等方性磁石が得られ、成形体を例えば、900～1200℃の温度範囲で不活性ガス雰囲気中あるいは真空中で、0.5～8時間焼結することにより焼結永久磁石を得る。

実施例

以下に、この発明による実施例を示しその効果を明らかにする。

実施例 1

平均粒度 $1.5\mu\text{m}$ の Nd_2O_3 粉末30.8g、
平均粒度 $1.5\mu\text{m}$ の Pr_2O_3 粉末12.4g、

平均粒度 $15.8\mu\text{m}$ を有しB56.4%のフェロボロン粉末7.3g、

平均粒度 $9.8\mu\text{m}$ の鉄粉38.4g、

平均粒度 $10.3\mu\text{m}$ のニッケル粉2.1g、

平均粒度10meshの金属Ca粒50.4g (還元に必要な化学論必要量の3.2倍)

以上の粉体を、V型混合器を使用しArガス雰囲気中で混合した。

ついで、上記の混合粉末をArガス流気雰囲気中で $4^\circ\text{C}/\text{min}$ で昇温し、 1120°C 、2.0時間の条件で還元拡散反応を促進させたのち、室温まで炉冷した。

得られた還元反応生成物を10ℓの水に投入し、反応副生成物のCaOを H_2O と反応させて $\text{Ca}(\text{CH})_2$ となし、水酸化カルシウム懸濁液にリーチング、すなわち、攪拌、うわすみ液除去、注水を繰返した。また攪拌の際に酢酸を10cc加えながらリーチングした。

得られたスラリー状合金粉末をメタノールで数回洗浄し、さらに室温で30時間、 10^{-3}Torr の条件で真空乾燥し、この発明による永久磁石用合金粉末を得た。

得られた合金粉末は、成分組成が、

Nd11.8原子%、Pr4.6原子%、

B9.4原子%、

Fe68.2原子%、Ni4.7原子%、

Ca0.4原子%、 O_2 2070ppm、

C800ppm、P80ppm、S120ppm、

であつた。

得られた合金粉末を電子顕微鏡 (倍率 $\times 1500$) で観察したところ、第1図の電子顕微鏡写真に明らかな如く、粉末合金内部には結晶粒界ないし何らかの相境界あるいは微細な複合組織はほとんど認められず、実質的に単結晶からなる合金粉末であつた。

また、平均粒度は $3.8\mu\text{m}$ であり、X線回折によると、 $a = 8.76\text{\AA}$ 、 $c = 12.18\text{\AA}$ を有する正方晶系の金属間化合物を主相とする合金粉末であつた。

この合金粉末を用いて磁界10kOe中で配向し、 $1.5\text{t}/\text{cm}^2$ にて加圧成型し、その後 1100°C 、1時間の条件で焼結し、さらにAr中で焼結後放冷し永久磁石を作製した。

永久磁石の磁気特性は、

$\text{Br} = 10.8\text{kG}$ 、

$i\text{Hc} = 9.5\text{kOe}$ 、

(BH) max = 24.6MGOe 、であつた。

実施例 2

平均粒度 $1.5\mu\text{m}$ の Nd_2O_3 粉末25.3g、

平均粒度 $1.5\mu\text{m}$ の La_2O_3 粉末13.1g

平均粒度 $15.8\mu\text{m}$ を有しB56.4%のフェロボロン粉末59.0g、

平均粒度 $9.8\mu\text{m}$ の鉄粉37.0g、

平均粒度 $11.2\mu\text{m}$ のコバルト粉2.1g、

平均粒度10meshの金属Ca粒38.5g (還元に必要な化学論必要量の2.7倍)

以上の粉体を、V型混合器を使用しArガス雰囲気中で混合した。

15 ついで、上記の混合粉末をArガス流気雰囲気中で $3^\circ\text{C}/\text{min}$ で昇温し、 1100°C 、3.0時間の条件で還元拡散反応を促進させたのち、室温まで炉冷した。

得られた還元反応生成物を10ℓの水で投入し、反応副生成物のCaOを H_2O と反応させて $\text{Ca}(\text{OH})_2$ となし、水酸化カルシウム懸濁液にリーチング、すなわち、攪拌、うわすみ液除去、注水を繰返した。また攪拌の際に酢酸を10cc加えながらリーチングした。

25 得られたスラリー状合金粉末をメタノールで数回洗浄し、さらに室温で24時間、 10^{-3}Torr の条件で真空乾燥し、この発明による永久磁石用合金粉末を得た。

得られた合金粉末は、成分組成が、

30 Nd10.4原子%、La4.9原子%、

B7.3原子%、

Fe48.5原子%、Co27.9原子%、

Ca0.2原子%、 O_2 1520ppm、

Cl090ppm、P110ppm、S75ppm、

35 であつた。

得られた合金粉末は実質的に単結晶からなり、その平均粒度は $4.2\mu\text{m}$ であり、X線回折によると、 $a = 8.79\text{\AA}$ 、 $c = 12.20\text{\AA}$ を有する正方晶系の金属間化合物を主相とする合金粉末であつた。

この合金粉末を用いて磁界10kOe中で配向し、 $1.5\text{t}/\text{cm}^2$ にて加圧成型し、その後 1120°C 、1時間の条件で焼結し、さらにAr中で焼結後放冷し永久磁石を作製した。

永久磁石の磁気特性は、

Br=11.9kG、

iHc=11.8kOe、

(BH) max=27.3MGOe、であつた。

実施例 3

平均粒度 $1.5\mu\text{m}$ の Nd_2O_3 粉末44.6g、

平均粒度 $15.8\mu\text{m}$ を有しB56.4%のフェロボロン粉末9.3g、

平均粒度 $9.8\mu\text{m}$ の鉄粉53.8g、

平均粒度10 meshの金属Ca粒52.0g (還元に必要な化学論必要量の3.4倍)

以上の粉体を、V型混合器を使用しArガス雰囲気中で混合した。

ついで、上記の混合粉末をArガス流気雰囲気中で $2^\circ\text{C}/\text{min}$ で昇温し、 1095°C 、2.0時間の条件で還元拡散反応を促進させたのち、室温まで炉冷した。

得られた還元反応生成物を10ℓの水で投入し、反応副生成物のCaOを H_2O と反応させてCa(OH)₂となし、水酸化カルシウム懸濁液にリーチング、すなわち、攪拌、うわすみ液除去、注水を繰返した。また攪拌の際に酢酸を10cc加えながらリーチングした。

得られたスラリー状合金粉末をメタノールで数回洗浄し、さらに室温で24時間、 10^{-3}Torr の条件で真空乾燥し、この発明による永久磁石用合金粉末を得た。

得られた合金粉末は、成分組成が、

Nd15.3原子%、

B10.2原子%、

Fe72.5原子%、

Ca0.4原子%、 O_2 2090ppm、

C890ppm、P75ppm、S80ppm、

であつた。

得られた合金粉末は実質的に単結晶からなり、その平均粒度は $4.7\mu\text{m}$ であり、X線回折によると、 $a=8.79\text{\AA}$ 、 $c=12.12\text{\AA}$ を有する正方晶系の金属間化合物を主相とする合金粉末であつた。

この合金粉末を用いて磁界10kOe中で配向し、 $1.5\text{t}/\text{cm}^2$ にて加圧成型し、その後 1100°C 、3時間の条件で焼結し、さらにAr中で焼結後放冷し、永久磁石を作製した。

永久磁石の磁気特性は、

Br=11.2kG、

iHc=10.4kOe、

(BH) max=27.9MGOe、であつた。

実施例 4

出発原料として、

純度99.9%の電解鉄、

5 B19.4%を含有し残部はFe及びC等の不純物からなるフェロボロン合金、

純度99.7%以上のNd、Prを、アルゴン雰囲気中高周波溶解し、その後水冷銅鑄型に鑄造し、

10Nd-4Pr-8B-78Fe(at%)なる組成のイン

10 ゴットを得た。

このインゴットをスタンプミルにより35メッシュスルーまでに粗粉碎し、有機溶媒中、3時間、ボールミルで微粉碎した。

得られた合金粉末は、成分組成が、

15 Nd9.7原子%、Pr3.6原子%、

B7.9原子%、

Fe77.9原子%、

O_2 3200ppm、C750ppm、P80ppm、

S50ppm、であつた。

20 得られた合金粉末は実質的に単結晶からなり、その平均粒度は $3.5\mu\text{m}$ であり、X線回折によると、 $a=8.80\text{\AA}$ 、 $c=12.22\text{\AA}$ を有する正方晶系の金属間化合物を主相とする合金粉末であつた。

この合金粉末を用いて磁界8kOe中で配向し、
25 $1.0\text{t}/\text{cm}^2$ にて加圧成型し、その後 1150°C 、3時間の条件で焼結し、さらにAr中で焼結後放冷し、永久磁石を作製した。

永久磁石の磁気特性は、

Br=11.5kG、

30 iHc=8.2kOe、

(BH) max=28.4MGOe、であつた。

実施例 5

出発原料として、

純度99.9%の電解鉄、

35 B19.4%を含有し残部はFe及びC等の不純物からなるフェロボロン合金、

純度99.7%以上のNd、Gd、

純度99.9%の電解Coを、高周波溶解しその後水冷銅鑄型に鑄造し、13Nd-3Gd-7B-15Co-
62Fe(at%)なる組成のインゴットを得た。

このインゴットをスタンプミルにより35メッシュスルーまでに粗粉碎し、アルゴン雰囲気中でジェットミルで微粉粉碎した。

得られた合金粉末は、成分組成が、

15

Nd12.7原子%、Pr2.5原子%、
B6.8原子%、
Fe60.9原子%、
Co14.9原子%、
O₂2800ppm、C650ppm、P120ppm、S80ppm、
であつた。

得られた合金粉末は実質的に単結晶からなり、
その平均粒度は $2.8\mu m$ であり、X線回折による
と、 $a = 8.80 \text{ \AA}$ 、 $c = 12.23 \text{ \AA}$ を有する正方晶系
の金属間化合物を主相とする合金粉末であつた。

この合金粉末を用いて磁界10kOe中で配向し、
1.2t/cm²にて加圧成型し、その後1120℃、2時間
の条件で焼結し、さらにAr中で焼結後放冷し、
永久磁石を作製した。

永久磁石の磁気特性は、

Br=12.2kG、

IHC=10.6kOe、

16

(BH) max=30.4MGOe、であつた。

発明の効果

この発明の永久磁石用合金粉末は、Rとして
NdやPrを中心とする資源的に豊富な軽希土類を
主に用い、R、B、Feを主成分とし、有用・粉
砕法や直接還元拡散法にて得られた実質的に単結
晶ないし数個の結晶粒からなり特定の平均結晶粒
径及び平均粒度を有し、合金粉末のみですぐれた
磁気特性を有し、そのままボンド磁石用粉末材料
に適しており、また、焼結磁石用粉末材料として
微細で均質なため、24MGOe以上の極めて高い
エネルギー積並びに高残留磁束密度、高保磁力を
有し、かつすぐれた残留磁束密度の温度特性を示
す永久磁石材料を安価に得ることができる。

15 図面の簡単な説明

第1図はこの発明による永久磁石用合金粉末の
電子顕微鏡写真である。

第1図

